

中炭素鋼におけるセメンタイト球状化挙動の
電子顕微鏡によるその場観察金築 裕*・安永 恵一*²・森 博太郎*³*In-situ* TEM Observation of Spheroidization Behavior of
Cementite in Medium Carbon Steels

Yutaka KANETSUKI, Keiichi YASUNAGA and Hirotaro MORI

Synopsis:

The spheroidization treatment for medium carbon steels has been usually performed by annealing just above A_1 temperature and slow cooling.

In this study, the spheroidization behavior of cementites in the steel was *in-situ* observed by ultra-high voltage electron microscopy, in order to investigate the effect of initial microstructure on the spheroidization behavior. Two microstructures, i. e. fine ferrite-pearlite and bainite, were selected as the initial microstructure for the treatment, and were prepared by thermo-mechanical treatments.

By continuous observation, following results were obtained. Re-austenitization occurred at colony and grain boundaries in ferrite-pearlite structure. In the case of bainite, it occurred in the vicinity of small cementite particle which distributed homogeneously in ferrite grain. Furthermore, substructures were formed by re-arrangement of dislocations.

During cooling, coalescence of austenite grains occurred. Based upon the observation of this behavior, discussion was focused on the role of internal stress caused by eigen strain due to transformation.

Key words: medium carbon steel; intercritical annealing; spheroidization; re-austenitization; high voltage electron microscopy.

1. 緒 言

機械部品の多くは熱間、もしくは冷間で鍛造により成形される。このうち冷間鍛造は熱間鍛造に比較し歩留り、精度に優れております。多く適用されてきている。冷間鍛造を機械構造用鋼である中炭素鋼に適用するにあたり、これまでセメンタイトの球状化焼鈍が行われてきた。しかしながら、この球状化処理は長時間の熱処理時間を要しそのため短時間での処理を可能にする素材が望まれてきている。

普通鋼では制御圧延、制御冷却により微細フェライト・パーライト組織にすることにより、球状化処理時間を簡略化した場合でも再生パーライトは生成せず良好な球状化組織が得られることを既に報告している¹⁾。一方、焼入性の良い低合金鋼では圧延後の通常空冷にお

いても、組織はベイナイトが混在、もしくは主体となる。ベイナイト組織を球状化処理した場合、炭化物の形状は良好な球状となるものの、微細に分散するため硬さの低下は小さく²⁾、そのためベイナイト組織においては炭化物の粗大化を促進することがのぞまれる。

球状化処理の方法には変態点直下の焼鈍によるものと二相域に加熱後さらに徐冷する方法の二つがある。後者の方法は一部オーステナイト化する反応を経て球状化する方法であり、中炭素鋼では多くこの方法が用いられている。ところで球状化挙動に関するこれまでの研究はほとんどが球状化処理前後の組織観察によるもので、組織の具体的な役割について詳細は不明である。またこれまでの報告は焼準処理後の組織であるフェライト・パーライト組織についてなされたもので、ベイナイト組織に関しては詳細に検討されていない。

平成3年10月本会講演大会にて発表 平成3年7月10日受付 (Received July 10, 1991)

* (株)神戸製鋼所鉄鋼技術研究所 工博 (Iron & Steel Research Laboratories, Kobe Steel Works, 1-3-18 Wakinohama-cho Chuo-ku Kobe 651)

*² (株)神戸製鋼所神戸製鉄所 (Kobe Works, Kobe Steel Works)

*³ 大阪大学超高压電子顕微鏡センター 工博 (Research Center for Ultra-High Voltage Electron Microscopy, Osaka University)

一方、二相域におけるオーステナイトへの逆変態に関してはこれまでも多くの報告^{3)~5)}があり、一般的には加熱後クエンチを行い観察する方法がとられている。しかしながら、二相域からの変態挙動はオーステナイト域からの通常の変態挙動に比べ大きく変化することが知られており⁶⁾、果たしてクエンチによって組織を正確に凍結できるか否かは疑問である。したがって、組織変化を正確に把握するためには変態のその場観察を行うことがぜひとも必要となる。超高压電子顕微鏡法はこの目的に対して最も有効な手段であり、本研究ではフェライト・パーライト組織およびベイナイト組織の球状化挙動の比較を超高压電子顕微鏡を用いたその場観察により検討することを目的とした。

2. 実験方法

用いた供試鋼は典型的な中炭素低合金鋼 SCM435 で Table 1 にその化学成分を示す。中炭素鋼 S45C は一部予備検討にもちいた。

電子顕微鏡では観察可能な面積は限定される。そのため組織変化を観察するための結晶粒径も観察視野の大きさに比べ十分に微細化する必要がある。Fig. 1 は組織の

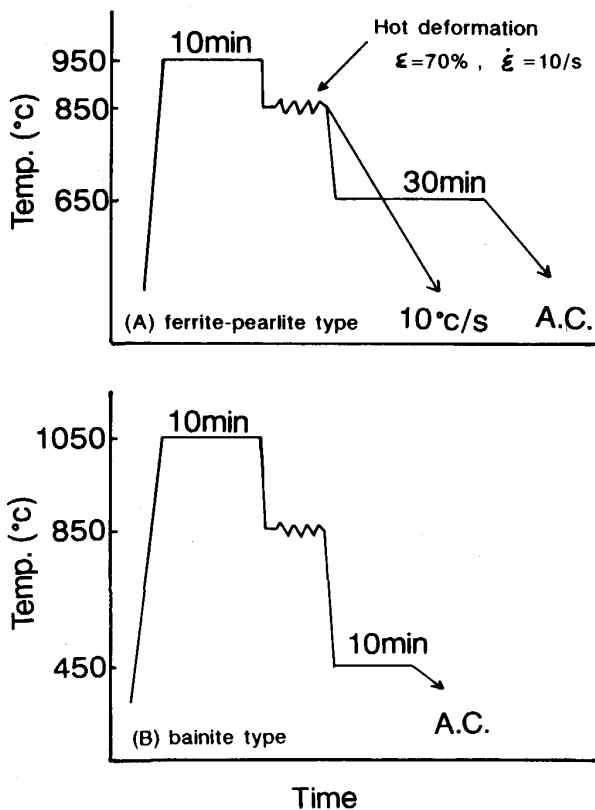


Fig. 1. Schematic illustration of thermo-mechanical treatment. (A) and (B) were applied for formation of fine ferrite-pearlite and bainite microstructure, respectively.

Table 1. Chemical compositions of steels used (mass %).

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo
SCM435	0.35	0.18	0.78	0.016	0.016	0.02	1.08	0.16
S45C	0.45	0.21	0.71	0.020	0.013	—	0.12	—

微細化のために用いた熱間加工シミュレーターによる加工熱処理のパターンを示している。試験片形状は直径 8 mm, 高さ 12 mm とし圧延棒鋼より機械加工により製作した。熱間加工条件は微細なオーステナイトの得られる条件で、詳細は S45C, SCM435 についてそれぞれ別報¹⁾²⁾に示しているが、熱間加工によりオーステナイト粒を微細化し、その後次に示すように制御冷却もしくは急冷恒温保持により組織調整を行った。

ここでは前組織の影響を検討するため、SCM435 を用い同一組成でフェライト・パーライト組織およびベイナイト組織に調整した。すなわち、Fig. 1 に示すように熱間加工後、それぞれ 650°C および 450°C で恒温変態により作成した。急冷恒温変態は熱間加工後の静的再結晶による組織の粗大化の防止が目的である。

電子顕微鏡観察のための試料は上述の処理後、縦断面中央部から採取し電解研磨により薄膜を作成した。Fig. 2 は電子顕微鏡内で加熱した時の温度パターンを示している。加熱、冷却速度の調整は試料近傍に設置したヒーターの電力調整を階段状にすることによって行った。最高加熱温度は薄膜のため組織の粗大化を防ぐ目的で、 A_1 点である 740°C とした。冷却速度は 20~30°C/h に対応する。組織変化は連続的にビデオ撮影し、また途中で写真撮影も行った。用いた加速電圧は 2 MV とし

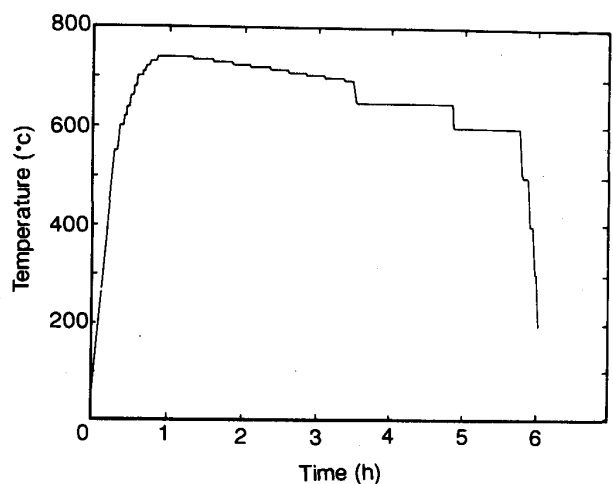


Fig. 2. Heat pattern applied for *in-situ* observation of spheroidization behavior by ultra-high voltage electron microscopy.

た。また、薄膜での反応とバルクでの反応の予備検討としての比較を次のように行った。前組織はこれまでも報告⁴⁾のあるフェライト・パーライト組織とし、S45Cを用い熱間加工後 10°C/s の連続冷却で微細組織を作成し、加工熱処理を施した後さらに 740°C に加熱直後に水冷により組織を凍結した。電顕観察は水冷後薄膜を製作する従来の方法により行った。

3. 実験結果

3.1 フェライト・パーライト組織 (S45C) の二相域から水冷した場合の組織変化

Photo. 1 は (A) に微細フェライト・パーライト組織を、また (B) にさらに 740°C に加熱直後に水冷した場合のバルクでの組織変化を示している。(B)においてフェライト・パーライト界面にマルテンサイト組織(矢印)が観察された。このマルテンサイトは 740°C でオーステナイト相であったことを示すもので、粒界でオーステナイトへ逆変態したことを、また界面においては粒内に比べオーステナイト化が非常に速く起こること

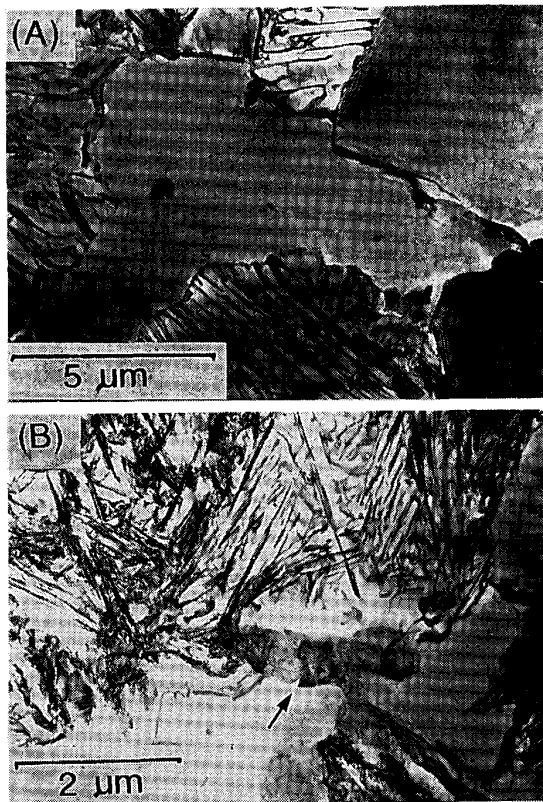


Photo. 1. TEM micrographs of the ferrite-pearlite microstructure (A) and the change caused by water-quenching after heating up to 740°C (B). The martensite located at boundaries indicates the rapid re-austenitization.

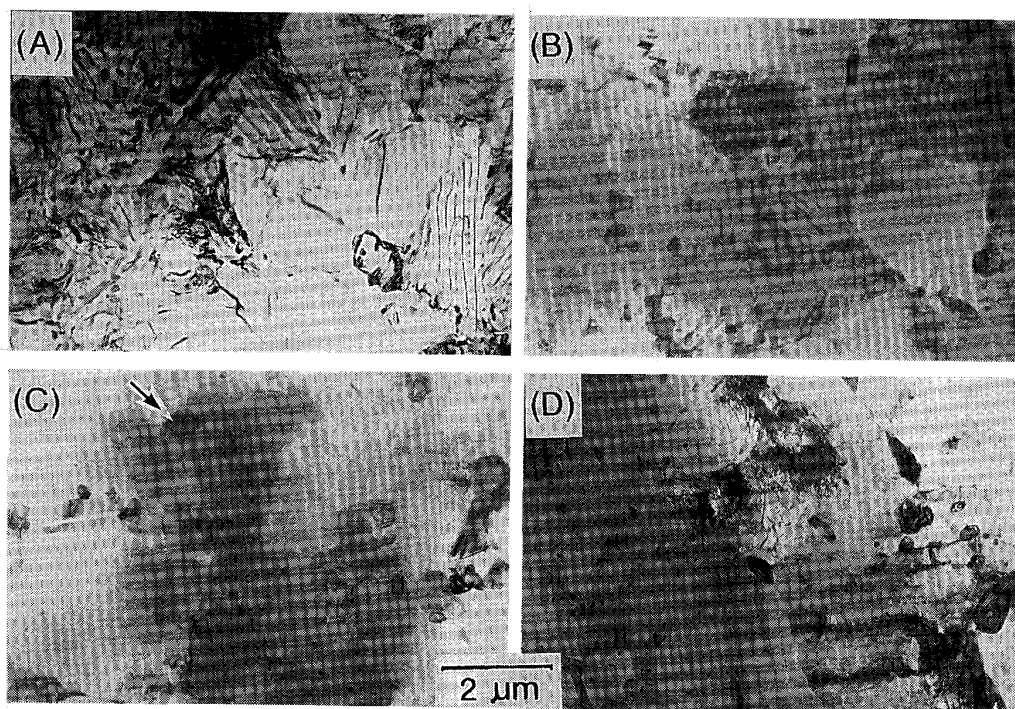
を示唆している。そこで、次に薄膜でのこの反応の再現の可能性について直接観察した結果と比較した。さらに本研究の目的である前組織の影響の比較検討のため次に述べる直接観察には同一組成で微細なフェライト・パーライトおよびベイナイト組織の得られる SCM435 を用いた。

3.2 フェライト・パーライト組織 (SCM435) の組織変化の直接観察結果

Photo. 2 は加熱、冷却過程でのフェライト・パーライト組織の変化を示すもので、(A) は加熱前の組織を (D) は冷却後の組織を (B)(C) は 675°C、730°C での観察結果で場所は異なるが代表的な組織である。電顕内での加熱、冷却によってセメントイトが球状化されていることが (D) で確認され、本実験で用いた熱処理パターンで、かつ電顕内で球状化処理のシミュレーションが可能であるかがわかった。また、(B)(C) では 3.1 で述べたように、セメントイトの再固溶によるオーステナイトへの逆変態が粒界で起こり、オーステナイト粒が粒界に生成することが確認された。次に場所を限定し反応の様子を連続観察した結果を次に述べる。

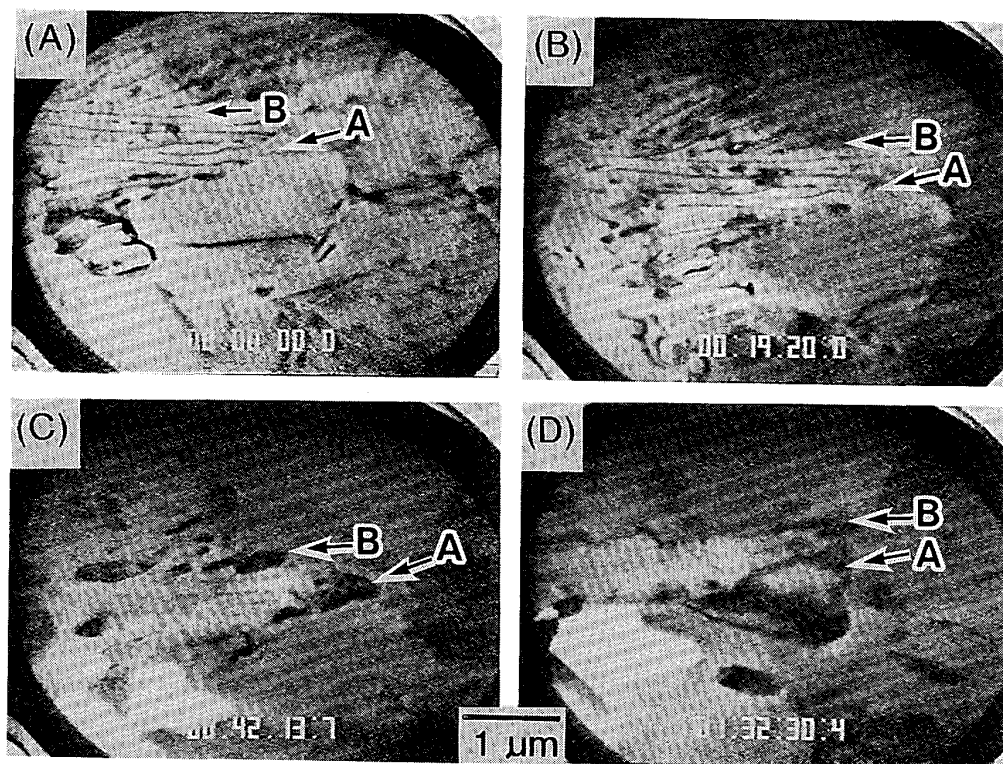
Photo. 3 は反応の過程を同一の場所で連続観察した結果の一例を示している。オーステナイトはフェライト・パーライト界面(矢印 A)およびパーライトコロニー界面(矢印 B)においてパーライト中の層状セメントイトの端から固溶することにより形成され、それらが合体することにより成長することがわかる。Photo. 1 に示した S45C の水冷した試料の観察結果に認められた反応が粒界で起こる様子が確認された。また、連続観察の結果セメントイトの変化が A_1 点よりも低い約 600°C で既に起こることがわかった。これまでの報告では例えば、YANG ら⁴⁾は界面でオーステナイト化する同様の反応を変態点直上で確認している。しかし本実験のように変態点の前後を連続的に観察した例はなく、反応開始温度を明らかにした例は見あたらない。さらに YANG らは焼もどし材を用いており、本実験材のように動的再結晶後に急冷した場合とは異なっている。したがって、逆変態反応が非平衡状態で変態したことにより促進される可能性を示していると考えられる⁷⁾が、この点は今後検討を要する。

Photo. 4 はフェライト・オーステナイト組織の冷却中の変化を示すもので、(A) および (B) は、それぞれ同一場所の 710°C、670°C での観察結果である。オーステナイト結晶粒の位置が相対的に変移していることが両者の比較からわかった。また、Photo. 4 (A) に矢印で示す微細粒は 670°C では認められず、大きく移動合体し



(A) and (D) show the initial and final microstructure
 (B) and (C) were taken at 675°C and 730°C, respectively
 An example of austenite grain is indicated by arrow

Photo. 2. TEM micrographs depicting successive stages of spheroidization in SCM435 steel with a ferrite-pearlitic microstructure.



(A) Room temperature (B) 650°C (C) 680°C (D) 720°C
 Ferrite-pearlite and colony boundary are indicated by arrow A and B, respectively

Photo. 3. Continuous observation of the change in ferrite-pearlite microstructure during annealing. New austenite grains were formed at grain and colony boundaries and fragmentation of pearlitic cementite occurred in pearlite grains.

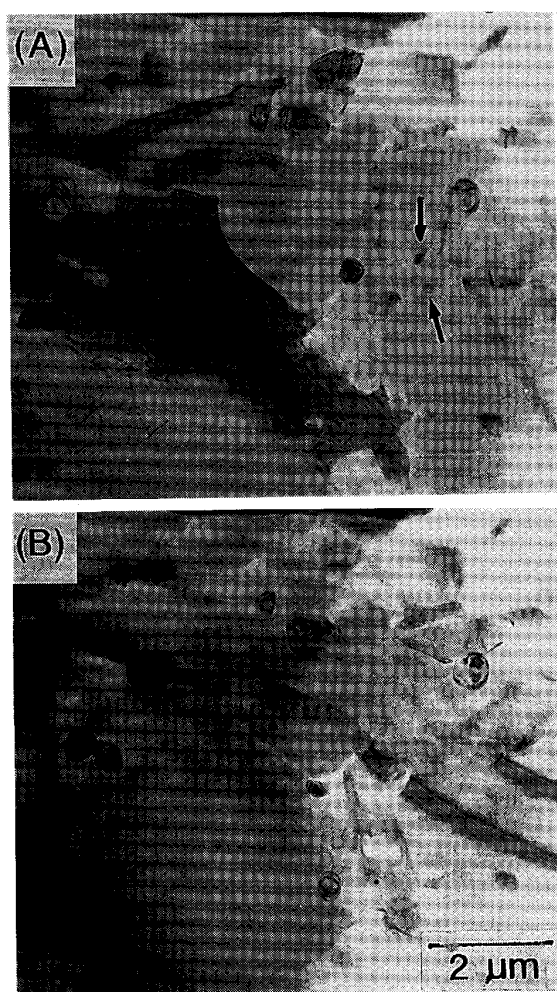


Photo. 4. TEM micrographs showing the microstructural change upon slow cooling at a fixed location. (A) and (B) were taken at 710°C and 690°C, respectively.

たものと考えられる。このオーステナイト粒の移動合体はフェライト粒界の移動により粒界に沿って起こったものと考えられる。さらに Photo. 4 (A)(B) の比較からわかるようにバンドコンター (Bend contour) は冷却中に、また恒温保持中にも大きく移動することが観察された。このことは応力状態が変化、または応力の発生を示唆している。応力は各部分における熱膨張係数の不均一や、冷却の不均一、変態により発生するが、ここでは徐冷であり、主として変態に起因するものと考えられる。

3.3 ベイナイト組織 (SCM435) の組織変化の直接観察結果

Photo. 5 はベイナイト組織の同一場所ではないが代表的な変化を示すもので、(A) は加熱前を、(D) は冷却後の組織であり、(B)(C) はそれぞれ 700°C、600°C の冷却中の状態を示している。(A)(D) の比較から明らかのように、加熱前にベイナイトラスに沿って析出して

いた微細セメンタイトは球状セメンタイトに変化し、また、Photo. 6 に拡大した冷却後の組織を示しているが、球状セメンタイト (矢印 A) とフェライト・パーライト組織では認められなかった転位下部組織 (矢印 B) が認められる。この転位下部組織は Photo. 5 (B)(C) に示すように逆変態中の組織においても認められる。冷却後のセメンタイトは組織的に大きな変化がないことから生成したオーステナイト粒から凝縮生成したものと考えられる。

転位下部組織の形成はフェライト・パーライト組織の場合と比べ特徴的である。これらの反応を連続観察した結果を次に示す。

Photo. 7 は加熱中の同一場所の変化を示したもので、加熱温度の上昇とともに、炭化物を含む微細な領域で変化が起こる。この段階で微細なオーステナイト粒が形成されていると考えられる。また、元のベイナイト中には高密度の転位が存在しているが、これらの転位が再配置により粒内にネットワーク状の転位下部組織 (矢印) を形成することがわかる。この組織は Photo. 5 に示すものと同じものである。

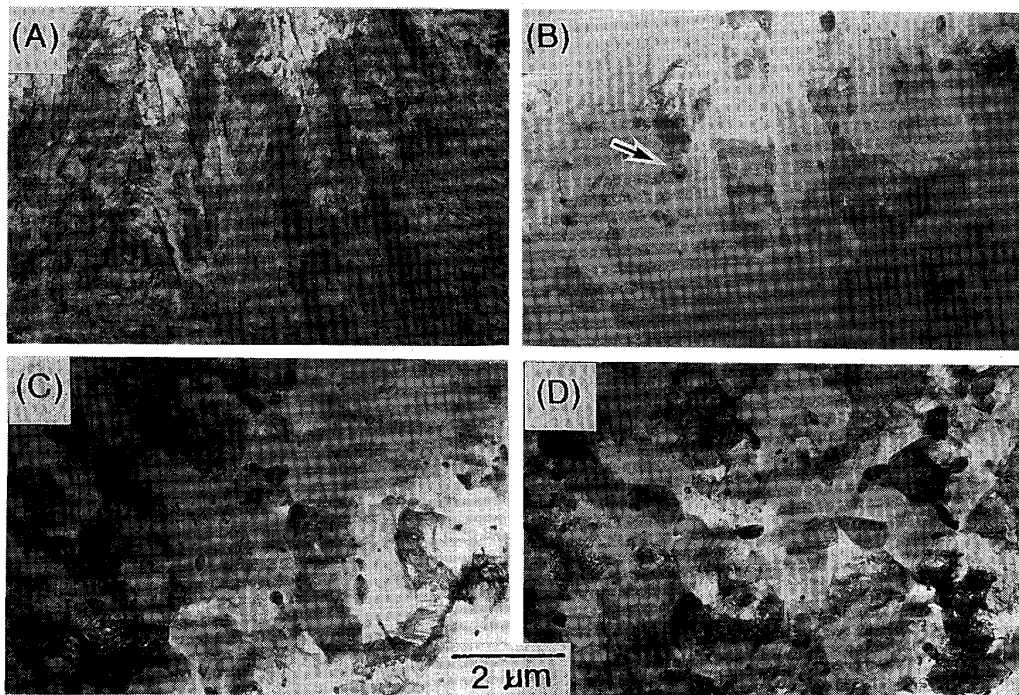
Photo. 8 には同一視野の同じ転位下部組織 (矢印) に注目し冷却中の変化の状況を観察した結果示しているが、刻々とその位置と形態を不規則に変化させることが認められた。

4. 考 察

中炭素鋼を二相域に加熱、徐冷することによりセメンタイトを球状化する方法に関して、超高压電顕内で組織変化を再現することが可能であることがわかった。以下に前組織をフェライト・パーライト組織とした場合の結果とベイナイト組織とした場合の結果を比較検討する。

フェライト・パーライト組織については従来の報告に示されているように⁸⁾、粒界に接したパーライト中のセメンタイトが固溶することによりオーステナイト粒が形成され、これらのオーステナイト粒が合体することにより逆変態が進行すること、また冷却により逆変態オーステナイト粒から球状セメンタイトが形成されることが確認された。

一方、ベイナイト組織についてはこれまでに報告されたものがなく、詳細は不明であったが、本実験の結果、次のことがわかった。二相域の温度で形成されるオーステナイト粒はフェライト粒内において炭化物から形成されるが、その合体の速度はフェライト・パーライト組織の場合と比較して著しく遅くほとんど進行しない。このように遅い合体速度のため冷却後のセメンタイトは球状で



(A) and (D) show the initial and final microstructure
 (B) and (C) were taken at 700°C and 600°C, respectively
 An example of austenite particle is indicated by arrow

Photo. 5. TEM micrographs showing successive stages of spheroidization in SCM435 steel with a bainitic microstructure.

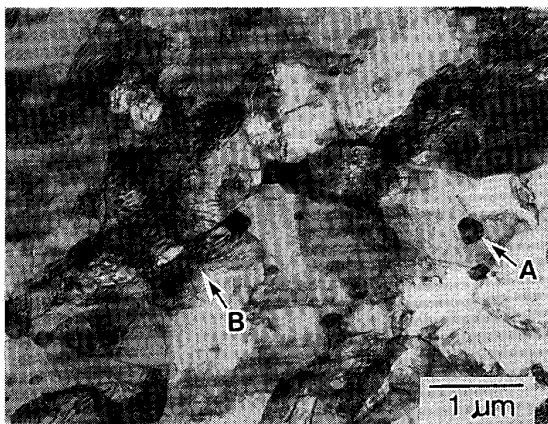


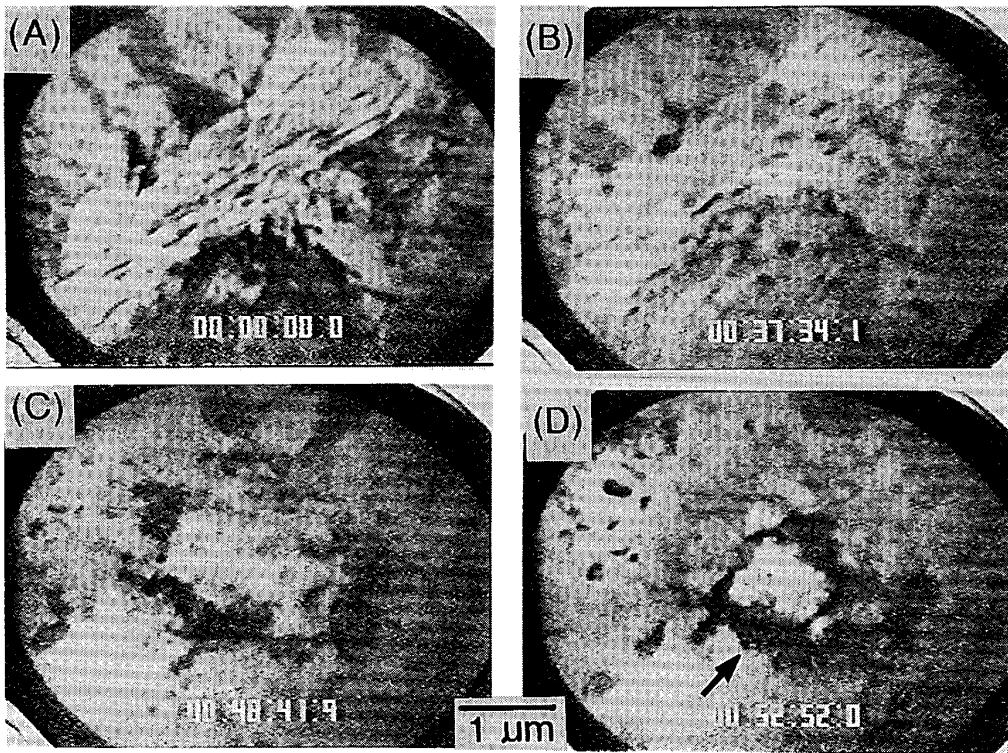
Photo. 6. TEM micrograph showing the typical example of spheroidized cementite particle (A) and dislocation substructure (B) in the case of bainitic initial microstructure.

あるが微細なままで、硬度の低下の小さいこれまでの結果をうらづけることがわかった。

上記の結果をオーステナイト粒の形成の過程で比較すると、フェライト・パーライト組織においてはパーライト中のセメンタイトの一端もしくは両端が大傾角粒界に接していることが炭化物の固溶と拡散に重要な役割を果たしている。一方ベイナイト組織では微細セメンタイトのほとんどはフェライト粒内にそれぞれが孤立して存在

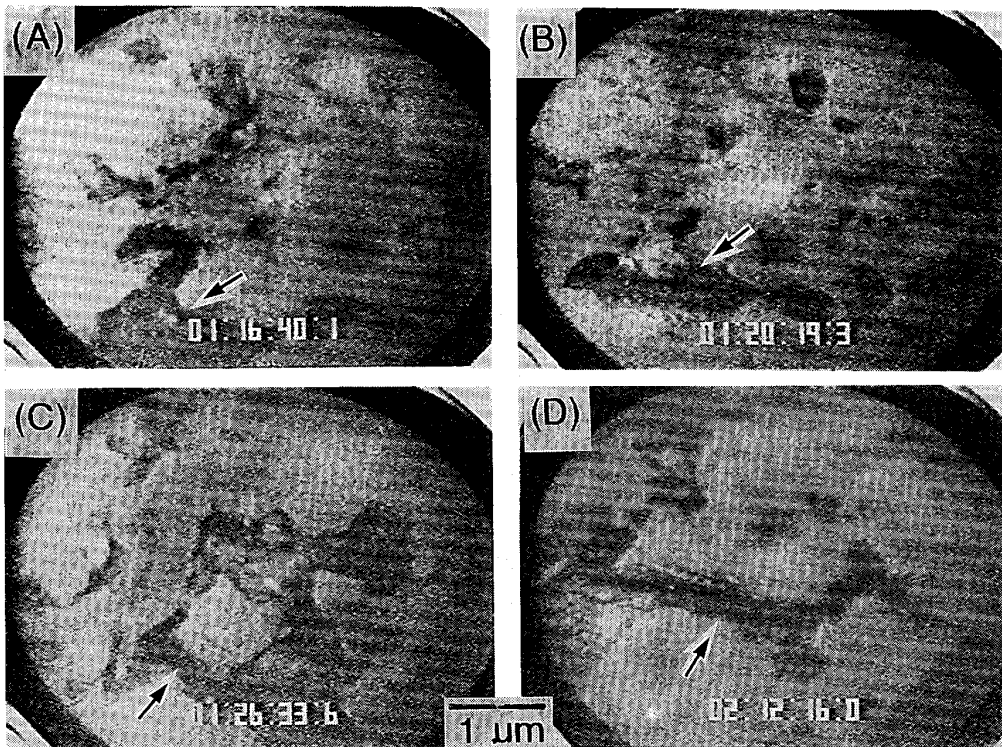
し、このことが両者の球状化挙動の相違の基本的な原因で、前組織が重要な役割を果たしていることを示している。

軟質化にはオーステナイト粒の合体、粗大化が重要な過程であるが、連続観察により合体速度に変態に起因する内部応力の不均一分布の寄与が大きいことも示唆された。本供試鋼の炭素量ではオーステナイトからフェライト・セメンタイトで約4%の体積変化が起こり、そのためオーステナイト粒には固有歪みが発生する。一例として Photo. 2 (D) に一部認められるようにフェライト・パーライト組織において冷却後の状態で局部的に新たに転位組織が形成されており、この転位組織は YANG らが α -veining⁹⁾ との関連を示唆しているように、変態に関与して形成される転位組織と考えられる。内部応力はさらに組織の再配列を促すが、フェライト・パーライト組織ではベイナイト組織に比べマクロ的に組織が不均質であることにより内部応力は比較的長範囲に及び粒界の移動によって緩和されると考えられる。一方、ベイナイトではオーステナイト粒も小さく比較的均質に分布しているため内部応力も短範囲であること、さらに、もともと存在していた粒内の転位はネットワーク状に再配置されるが、二相域でも安定に存在し、その移動により内部応力が粒内で緩和され、オーステナイト粒の合体粗大化が



(A) Room temperature (B) 700°C (C) 730°C (D) 740°C

Photo. 7. Continuous observation of the change in bainite microstructure upon heating. Spheroidization of cementite and the formation of dislocation substructure were recognized.



(A) 740°C (B) and (C) 735°C (D) 720°C

Photo. 8. Continuous observation of the change in dislocation substructure during slow cooling stage.

起こりにくい原因と考えられる。

次に、セメンタイトの成長の過程であるが、通常、球状セメンタイトと共存して再生パーライトが生成するため、再生パーライトの制御が工業的に重要である。しかしながら、再生パーライトの生成機構についてはまだ不明である。従来、セメンタイトの完全固溶には時間を要するため微細セメンタイトが残留し、球状セメンタイトはこの微細セメンタイトを核に成長すると考えられている。したがって、微細セメンタイト核が消失した場合には再生パーライトが生成すると考えられている。ベイナイト組織では冷却後のセメンタイトは良好な球状を呈しており、本実験ではセメンタイト核についての詳細な観察は行っていないが残存セメンタイトに対応して生成したものと考えられる。再生パーライトへの変態は、フェライト・オーステナイト界面からのパーライト変態である亜共析鋼と同様な状況と考えられるが、例えば THOMPSON らは、パーライト中のフェライトが初析フェライトと連続していること、界面に転位が多く生成しているなど通常のパーライト変態と異なる現象を報告しており¹⁰⁾、微細セメンタイト核の有無だけではなくセメンタイトの成長過程について詳細な検討がさらに必要と考えられる。

5. 結 言

フェライト・パーライト組織とベイナイト組織の球状化挙動を超高圧電顕による直接観察により比較し、次の結果が得られた。

(1) フェライト・パーライト組織における逆変態は粒

界で起こり、このため速い速度で粗大オーステナイト粒が形成される。一方、ベイナイト組織におけるオーステナイトへの逆変態はベイナイトラス間の微細セメンタイトの固溶により起こるが、これらの微細オーステナイト粒の合体は起こりにくい。これは大傾角粒界に接したセメンタイトが少ないことがその原因と考えられる。

(2) またセメンタイトの分散粗大化はオーステナイト粒の移動、合体によるが、その駆動力として変態による固有歪みが考えられる。固有応力の分布が合体速度に影響しており、そのため組織的に比較的均質なベイナイトでは粗大化が起こりにくいもう一つの原因と考えられる。

文 献

- 1) 金築 裕, 勝亦正昭, 澤田裕治: 鉄と鋼, **75** (1989), p. 1178
- 2) 粕谷 治, 安永恵一, 金築 裕: 材料とプロセス, **3** (1990), p. 1831
- 3) G. R. SPEICH and A. SZIRMAE: Trans. AIME, **245** (1969), p. 1063
- 4) D. Z. YANG, E. L. BROWN, D. K. MATLOCK and G. KRAUSS: Metall. Trans. A, **16** (1985), p. 1523
- 5) E. NAVARA, B. BENGTSSON and K. E. EASTERLING: Mater. Sci. Technol., **2** (1986), p. 1196
- 6) B. M. BRONFIN, M. I. GOLDSHTEYN, A. A. YEMEL'YANOV and A. Z. SHIFMAN: Phys. Met. Metall., **59** (1985), p. 129
- 7) 金築 裕, 勝亦正昭, 井上 毅: 鉄と鋼, **76** (1990), p. 73
- 8) M. NEMOTO: Metall. Trans. A, **8** (1977), p. 431
- 9) I. ZWELL, L. A. GORMAN and S. WEISSMANN: Trans. ASM, **59** (1966), p. 491
- 10) S. W. THOMPSON and P. R. HOWELL: Scr. Metall., **22** (1988), p. 1775